

PCT/JP 2004/004182

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

25. 3. 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 6 月 3 0 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 1 8 6 6 3 2
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 3 - 1 8 6 6 3 2]

出 願 人 東レ株式会社
Applicant(s):

REC'D 21 MAY 2004

WIPO

PCT

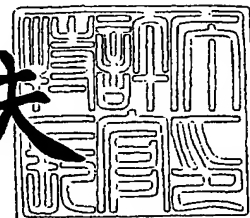
**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 4 月 3 0 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出 証 番 号 出 証 特 2 0 0 4 - 3 0 3 7 3 9 3

【書類名】 特許願

【整理番号】 32A03070-A

【提出日】 平成15年 6月30日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05K 1/03
B32B 5/16
B32B 7/02

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

【氏名】 山鋪 有香

【特許出願人】

【識別番号】 000003159

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

【氏名又は名称】 東レ株式会社

【代表者】 榊原 定征

【電話番号】 077-533-8176

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 005186

【納付金額】 21,000円

【その他】 国等の委託研究の成果に係る特許出願（平成14年度新エネルギー・産業技術総合開発機構基盤技術研究促進事業（民間基盤技術研究支援制度）委託研究、産業活力再生特別措置法第30条の適用を受けるもの）

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 誘電体組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 無機フィラーと樹脂を有する誘電体組成物であって、少なくとも 2 種類の平均粒径を有する無機フィラーを含み、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ であることを特徴とする誘電体組成物。

【請求項 2】 最小の平均粒径に対し、最大の平均粒径が 3 倍以上であることを特徴とする請求項 1 記載の誘電体組成物。

【請求項 3】 無機フィラーがチタン酸バリウムからなる化合物を用いることを特徴とする請求項 1 記載の誘電体組成物。

【請求項 4】 無機フィラーの総体積と樹脂固形分の総体積の合計体積に対する無機フィラーの総体積の割合 V_f が、50%以上95%以下を満たすことを特徴とする請求項 1 記載の誘電体組成物。

【請求項 5】 前記樹脂が熱硬化性樹脂を含有することを特徴とする請求項 1 記載の誘電体組成物。

【請求項 6】 リン酸エステル骨格を有する化合物を含有することを特徴とする請求項 1 記載の誘電体組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、コンデンサやコンデンサとしての機能を有する回路材料用の層間絶縁材料として好適な特性を示す誘電体組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、電子機器の小型化、信号の高速化や大容量化の要求に伴って、実装回路部品の高密度化が進んでいることにより、電氣的ノイズが増大し、データエラーが発生することが問題になってきている。この電氣的ノイズの発生を抑え、半導体デバイスを安定に動作させるためには、半導体デバイスに近い位置から必要量の電流を供給することが重要である。このためには、半導体デバイス直下に、容

量の大きなコンデンサをデカップリングキャパシタとして配置することが有効である。

【0003】

そこで、プリント配線板にコンデンサを配置する方法として、プリント配線板にチップコンデンサなどの外部コンデンサを配置する方法もあるが、小型化の点では、プリント配線板の内層に無機フィラーを加え、プリント配線板自体にコンデンサ機能を持たせる方法が有利であり、この方法として、無機フィラーと樹脂を混合した複合体を層間絶縁材料として用いる方法（例えば、特許文献1、2参照）が知られている。しかしながら、上記の方法による複合体の比誘電率は10～20程度と低いものであった。

【0004】

他方、高い比誘電率を得る方法として、2種以上の粒径を有するフィラーを添加する方法（例えば、特許文献3、4参照）が知られている。しかしながら、これらに用いられているフィラーは、最大の平均粒径を有するフィラーの平均粒径が $5\mu\text{m}$ 以上と大きく、このフィラーと樹脂とを混合することによって得られる複合体の膜厚は、 $300\mu\text{m}$ 程度と厚くならざるを得なかった。従って、これらの従来技術では、携帯電話などのモバイル機器の高性能化において急速に高まってきた薄型化へのニーズには対応できない状況にある。すなわち、内部に実装されるシステムの小型・薄型化を実現するために、メモリだけでなく端子数の多いLSIを混載した高密度SiP（システムインパッケージ）の開発が急ピッチで行われているが、このSiPの中に内蔵されるコンデンサは、薄型化が強く要求され、このコンデンサ用層間絶縁材料の膜厚として、 $10\mu\text{m}$ 以下とすることが必要となってきたのである。従来技術では、到底、この $10\mu\text{m}$ 以下という薄型化の要求を満たすことができなかった。

【0005】

また、層間絶縁材料に要求される重要な基本特性として、低線膨張係数が挙げられる。樹脂自体の線膨張係数は $50\text{ppm}/^\circ\text{C}$ 以上であり、配線層となる金属、例えば、銅の線膨張係数（ $17\text{ppm}/^\circ\text{C}$ ）と比較して非常に大きい。従って、樹脂のみからなる層間絶縁材料を用いた場合、配線層との線膨張係数の相違の

ために、ストレスによる層間剥離や配線断裂などの不具合が生じる。これに対して、樹脂に無機フィラーを複合化すると線膨張係数を低くすることができるため、無機フィラーと樹脂を混合した複合体を層間絶縁材料として用いた場合には、配線層の線膨張係数の値に近づけることが可能となる。しかしながら、従来の方法では、無機フィラーを十分に高充填化することができず、配線層の線膨張係数にはほぼ近い値まで下げることができなかった。

【0006】

【特許文献1】

特開平5-57852号公報（特許請求の範囲）

【0007】

【特許文献2】

特開平6-85413号公報（特許請求の範囲）

【0008】

【特許文献3】

特開昭53-88198号公報（特許請求の範囲）

【0009】

【特許文献4】

特開2001-233669号公報（特許請求の範囲）

【0010】

【発明が解決しようとする課題】

かかる状況に鑑み、本発明は、線膨張係数が低い誘電体組成物を得ることを目的とし、さらには、高密度SiPに内蔵される大静電容量コンデンサ用層間絶縁材料として使用可能な、十分な薄型化が達成された、誘電体組成物を提供する。

【0011】

【課題を解決するための手段】

すなわち本発明は、無機フィラーと樹脂を有する誘電体組成物であって、少なくとも2種類の平均粒径を有する無機フィラーを含み、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ であることを特徴とする誘電体組成物である。

【0012】

【発明の実施の形態】

本発明の誘電体組成物は、無機フィラーと樹脂を有する誘電体組成物であって、少なくとも2種類の異なる平均粒径を有する無機フィラーを含み、最大の平均粒径が0.1～5 μm であることを特徴とする誘電体組成物である。

【0013】

無機フィラーの形状としては、球状、略球状、楕円球状、針状、板状、鱗片状、棒状などが挙げられるが、特に、球形あるいは略球形であることが好ましい。球状あるいは略球状のフィラーは、最も比表面積が少ないために充填時にフィラー凝集や樹脂流動性低下などを生じにくいからである。これらのうち1種を単独で用いたり、2種以上を混合して用いたりすることができる。

【0014】

低線膨張係数、および高比誘電率を得るためには、これらの無機フィラーを高充填率で樹脂に含有させることが望ましい。

【0015】

層間絶縁材料として一般に使用される有機樹脂は、例えば、ポリイミドで30～50 ppm/°C、エポキシ樹脂で50 ppm/°C以上の線膨張係数を有し、配線金属、例えば、銅の線膨張係数 17 ppm/°Cに比較して非常に大きい。無機フィラーを混合させることにより、線膨張係数を下げることが可能となる。

【0016】

また、無機フィラーと樹脂からなる誘電体組成物において、その誘電体組成物の比誘電率は、複合体における比誘電率の導出式、いわゆる下記に記載した対数混合則(1)に従う(セラミックス材料科学入門(応用編)、内田老鶴圃新社、W.D.Kingery著、小松和蔵ら訳、p912)が、高誘電率を有する無機フィラーの含有量が高いほど、得られる誘電体組成物の比誘電率は高くなるからである。

【0017】

【数1】

$$\log \epsilon = \sum_i V_i \cdot \log \epsilon_i \quad (1)$$

【0018】

ϵ : 複合体の比誘電率

ϵ_i : 複合体の各成分の比誘電率

V_i : 複合体の各成分の体積分率

無機フィラーを高充填率で樹脂に含有させるために、本発明においては、2種類以上の異なる平均粒径を持つものを混合して用いる。単一粒径のフィラーを充填した場合、特に、フィラーが球状あるいは略球状である場合には、高密度に充填するとフィラーとフィラーの間に菱形状の空隙が生じ、この空隙にはもはや他のフィラーが侵入することは出来ない。しかし、この空隙以下の大きさのフィラーであればさらにこの隙間に侵入でき、容易に充填率を向上できるのである。

【0019】

本発明では含まれる無機フィラーにおいて、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径と最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径の差比は、大きいほど好ましく、最大の平均粒径は最小の平均粒径に対し、3倍以上、さらには5倍以上であることが好ましい。差比が小さいと、小さいフィラーが効率よく大きいフィラー間の空隙に侵入しにくい。一方、差比が大きいと、小さいフィラーが凝集しやすくなり、分散安定性が低下するので、30倍以下、さらには10倍以下であることが好ましい。

【0020】

本発明で用いられる無機フィラーは、少なくとも2種類の平均粒径を有しているが、その最大の平均粒径を持つ無機フィラーの総体積 V_a と最小の平均粒径を持つ無機フィラーの総体積 V_b が、 $0.05 \leq V_b / (V_a + V_b) < 0.5$ を満たすことが好ましい。つまり小さいフィラーの量は、体積比にしてフィラー全量の5%以上50%未満であることが好ましい。5%未満の場合には、空隙に侵入して充填量を上げる効果がほとんど得られず、また50%以上では、大きいフィラーの作る空隙よりも小さいフィラーの占める体積が大きくなり、相互侵入して充填量を増やす効果は少なくなる。

【0021】

これらの大きいフィラー、小さいフィラーの他に、更に他の粒径のフィラーを

混合しても良く、3種類以上でも適宜粒径と配合比を選ぶことでフィラーを混合することによる充填率向上の効果が得られる。

【0022】

本発明で用いられる無機フィラーは、少なくとも2種類の異なる平均粒径を有する無機フィラーを含み、そのうち最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ であることが必要である。最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径は、好ましくは $0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.3 \sim 1 \mu\text{m}$ であるのがよい。ここで、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $5 \mu\text{m}$ より大きいものを用いて、膜厚 $10 \mu\text{m}$ 以下のコンデンサを作製しようとする、フィラーが膜表面に突出しやすくなるために、安定した誘電特性が得ることが難しい。また、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $2 \mu\text{m}$ より大きいものを用いた場合には、フィラー分散液のフィラーが沈降しやすい。さらに、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $1 \mu\text{m}$ より大きいものを用いた場合には、分散直後のフィラー沈降は少ないものの、長期保管後にはフィラーが沈降しやすく、保管条件が制限される可能性がある。一方、最大の平均粒径が $0.1 \mu\text{m}$ より小さい場合には、それらのフィラーの比表面積が大きいために結晶構造の対称性が高くなりやすく、高誘電率が得られにくく、誘電体組成物の比誘電率が低下してしまう原因となる。また、最大の平均粒径が $0.2 \mu\text{m}$ より小さいと、フィラー表面積が大きくなり、フィラー分散ペーストが凝集し、粘度が高くなりやすく、混練、分散や塗布加工が影響を受けやすい。さらに、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $0.3 \mu\text{m}$ より小さいと、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径と最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径の差比を十分大きくとることが難しくなり、充填率が左右される。

【0023】

また本発明では、最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径は $0.01 \sim 0.1 \mu\text{m}$ であることが好ましい。さらには $0.04 \sim 0.06 \mu\text{m}$ のものをを用いることがより好ましい。なお最大の平均粒径と最小の平均粒径の差比をとる必要があるため、最小の平均粒径を有する無機フィラーは、最大の平均粒径によ

って、上記の範囲から適宜選択されることになる。最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径は、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径との差比を大きくとった方が、充填率を高め、複合体の比誘電率を高めることができる。この理由により、最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径は、最大の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径の好ましい範囲から考えて、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以下が好ましく、より好ましくは、 $0.06\ \mu\text{m}$ 以下である。しかしながら、最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径が $0.04\ \mu\text{m}$ より小さい場合は、分散後の再凝集が激しく、ペーストの分散安定性が制御しにくい。また、最小の平均粒径を有する無機フィラーの平均粒径がさらに $0.01\ \mu\text{m}$ より小さくなると、それらのフィラーどうしが強固に二次凝集しているために、凝集体を解し、分散するために相当なエネルギーを消費することになってしまう。

【0024】

なお、無機フィラーの平均粒径の測定は、走査型電子顕微鏡観察法やレーザー回折法のほか、フィラーのブラウン運動による散乱光の揺らぎを測定する動的光散乱法、フィラーを電気泳動したときの散乱光のドップラー効果を測定する電気泳動光散乱法などによって行うことができる。レーザー回折、散乱式の粒度分布測定装置としては例えば堀場製作所製 LA-920 や島津製作所製 SALD-1100、日機装製 MICROTRAC-UPA150 等がある。これらの装置により求めた粒度分布から、累積分布 50% の粒径、いわゆる D50 粒径を平均粒径として用いることが出来る。

【0025】

無機フィラーの誘電特性としては、比誘電率が 50～30000 のものを用いることが好ましい。比誘電率が 50 未満の無機フィラーを用いると比誘電率が十分大きい誘電体組成物が得られない。また、比誘電率が 30000 を越えるものでは、比誘電率の温度特性が悪くなる傾向があるため、好ましくない。ここでいう無機フィラーの比誘電率とは、無機フィラーを原料粉末として、加熱、焼成して得られる焼結体の比誘電率をさす。焼結体の比誘電率は、例えば以下の手順によって測定する。無機フィラーをポリビニルアルコールのようなバインダー樹脂、有機溶剤もしくは水を混合して、ペースト状組成物を作製したのち、ペレット

成型器の中に充填して、乾燥させ、ペレット状固形物を得る。そのペレット状固形物を、例えば900～1200℃程度で焼成することにより、バインダー樹脂を分解、除去し、無機フィラーを焼結させ、無機成分のみからなる焼結体を得ることができる。このとき、焼結体の空隙は十分小さく、理論密度と実測密度から計算した空隙率が1%以下となっていることが必要である。この焼結体ペレットに上下電極を形成し、静電容量および寸法の測定結果から、比誘電率を計算する。

【0026】

無機フィラーの化学組成としては、二酸化チタン系、チタン酸バリウム系、チタン酸ジルコン酸バリウム系、チタン酸ストロンチウム系、チタン酸カルシウム系、チタン酸ビスマス系、チタン酸マグネシウム系、チタン酸バリウムネオジム系、チタン酸バリウム錫系、マグネシウムニオブ酸バリウム系、マグネシウムタantal酸バリウム系、チタン酸鉛系、ジルコン酸鉛系、チタン酸ジルコン酸鉛系、ニオブ酸鉛系、マグネシウムニオブ酸鉛系、ニッケルニオブ酸鉛系、タングステン酸鉛系、タングステン酸カルシウム系、マグネシウムタングステン酸鉛系などを挙げることができる。特に、ペロブスカイト型結晶構造、あるいは複合ペロブスカイト型結晶構造を有するフィラーを用いることが好ましい。これらのうち1種を単独で用いたり、2種以上を混合して用いたりすることができるが、少なくとも2種の異なる平均粒径を有する無機フィラーが同一化学組成である方が誘電特性の点から、好ましい。特に、高い比誘電率と商業的利便性の両立の点から、主としてチタン酸バリウムからなる化合物を用いることが好ましい。但し、誘電特性や温度安定性を向上させる目的で、シフター、デプレッサー剤などを少量添加して用いてよい。

【0027】

無機フィラーの作製方法としては、固相反応法、水熱合成法、超臨界水熱合成法、ゾルゲル法、しゅう酸塩法などの方法が挙げられる。最大の平均粒径を有する無機フィラーの作製方法としては、高い比誘電率と品質安定性の点から、固相反応法、あるいはしゅう酸塩法を用いることが好ましい。また、最小の平均粒径を有する無機フィラーの作製方法としては、小粒径化が容易であるという理由か

ら、水熱合成法、超臨界水熱合成法、ゾルゲル法のいずれかを用いることが好ましい。

【0028】

本発明の誘電体組成物に含まれる無機フィラーと樹脂の割合としては、無機フィラーの総体積と樹脂固形分の総体積の合計体積に対する無機フィラーの割合 V_f が、50%以上95%以下を満たすことが好ましい。さらに好ましくは70%以上90%以下である。無機フィラー含有率 V_f が50%未満では十分大きな比誘電率が得られない。また、無機フィラー含有率 V_f が70%未満では、本発明の骨子である少なくとも2種類の平均粒径を有する無機フィラーを用いても、単一粒径のフィラーを用いた場合と同程度の小さい比誘電率しか得られない。一方、無機フィラー含有率 V_f が95%を越えると、本発明の骨子である、少なくとも2種類の平均粒径を有する無機フィラーを用いても、なお、組成物内部での空隙発生を抑制することができず、十分な大きな比誘電率を得ることができない。また、無機フィラー含有率 V_f が90%を越えると、耐久性促進テストであるPCT（プレッシャークッカーテスト）後の接着性が、低下しやすくなるという問題が生じる。

【0029】

本発明で用いられる樹脂は、熱可塑性、熱硬化性樹脂のいずれでも良いが、はんだ耐熱性などの点から、好ましくは熱硬化性樹脂が用いられる。熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルサルフォン、ポリエーテルイミド、液晶ポリマー、ポリスチレン、ポリエチレン、フッ素樹脂などを用いることができる。また、熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド、アクリル樹脂、ベンゾシクロブテン樹脂、BT（ビスマレイミドトリアジン）レジン、イソシアネート樹脂などの一般的にプリント配線板の絶縁層に使用される樹脂を用いることができる。特に、熱硬化収縮性、粘性などの点からエポキシ樹脂が好ましく使用される。

【0030】

ここで、エポキシ樹脂とは、分子構造中にエポキシ基（オキシラン環）を2個

以上含むプレポリマーを有する樹脂である。プレポリマーは、誘電特性の点から、ビフェニル骨格あるいはジシクロペンタジエン骨格を有することが好ましい。また、硬化剤を有していてもよく、硬化剤には、フェノールノボラック樹脂、ビスフェノールA型ノボラック樹脂、アミノトリアジン化合物、ナフトール化合物などの硬化剤を用いることができる。さらに、トリフェニルホスフィン、ベンゾイミダゾール系化合物、トリス（2、4-ペンタンジオナト）コバルトなどの金属キレート化合物などの硬化促進剤を添加することも可能である。

【0031】

本発明の誘電体組成物を得る方法として、例えば、まず、無機フィラーを樹脂に混合させたペースト組成物を作製し、そのペースト組成物がある被着体（例えば基板）に塗布し、脱溶媒、固化を行うことにより、誘電体組成物を得る方法が挙げられる。このとき、固化の方法として、熱、光などによる固化が挙げられる。但し、本発明の誘電体組成物は焼結体ではないので、樹脂を完全に分解、除去する必要はなく、電子部品の耐熱温度範囲内、例えば、500℃以下の温度で加熱することが好ましい。

【0032】

そのペースト組成物は、無機フィラーを樹脂へ分散することによって得られる。例えば、無機フィラーを樹脂溶液に加えて、混合分散する方法や、予め無機フィラーを適当な溶媒中に分散した分散液を作製し、その分散液と樹脂溶液を混合するレットダウン法などによって作製される。また、樹脂または溶媒中へ無機フィラーを分散させる方法は特に限定されず、例えば、超音波分散、ボールミル、ロールミル、クレアミックス、ホモジナイザー、メディア分散機などの方法を用いることができるが、特に、分散性の点でボールミル、ホモジナイザーを用いるのが好ましい。

【0033】

無機フィラー分散の際、分散性を向上させるために、例えば、無機フィラーの表面処理、分散剤の添加、界面活性剤の添加、溶剤の添加などを行っても良い。無機フィラーの表面処理としては、シラン系、チタン系、アルミニウム系などの各種カップリング剤、脂肪酸、リン酸エステルなどによる処理のほか、ロジン処

理、酸性処理、塩基性処理などが挙げられる。また、分散剤の添加の例としては、リン酸、カルボン酸、脂肪酸、およびそれらのエステル類などの酸基を有する分散剤などが挙げられ、特に、リン酸エステル骨格を有する化合物が好ましく用いられる。そのほか、ノニオン性、カチオン性、アニオン性の界面活性剤、多価カルボン酸などの湿潤剤、両親和性物質、高立体障害の置換基を有する樹脂などの添加が挙げられる。また、溶剤の添加によって、分散時または分散後の系の極性を制御することができる。溶剤としては、樹脂を溶解するものを適宜選択すれば良いが、例えばエタノール、i-プロパノール、n-ブタノール、ベンジルアルコールなどのアルコール類、クロロベンゼン、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、ブチルセロソルブ等のセロソルブ類、メチルセロソルブアセテート、エチルセロソルブアセテート、ブチルセロソルブアセテート等のセロソルブエステル類、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテート等のプロピレングリコールエステル類、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン、テトラヒドロフラン、アニソールなどのエーテル類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、メチル-n-アミルケトン、シクロヘキサノン、 γ -ブチロラクトン、 γ -ブチロラクタム、ジオキサン、アセトン、シクロヘキサノン、シクロペンタノンなどのケトン類、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、スルホラン、メシチレン、テトラヒドロフラン、イソホロンなどが挙げられる。また、ペースト組成物には必要に応じて、安定化剤、分散剤、沈降防止剤、可塑剤、酸化防止剤などを添加してもよい。

【0034】

次に、ペースト組成物がある被着体に塗布する方法としては、特に限定されず、例えば、スピナー、スクリーン印刷、ブレードコーター、ダイコーターなどが挙げられる。塗布後の膜をホットプレート、オーブンなどの加熱装置を用いて、脱溶媒や熱硬化を行う。

【0035】

ペースト組成物を塗布する被着体（例えば基板）としては、例えば、有機系基

板、無機系基板、およびこれらの基板に回路の構成材料が配置されたものから選択できる。有機系基板の例としては、紙・フェノール銅張積層板、紙・エポキシ銅張積層板、紙・ポリエステル銅張積層板などの紙基材銅張り積層板、ガラス布・エポキシ銅張積層板、ガラス布・ポリイミド銅張積層板、ガラス布・テフロン（登録商標）銅張積層板などのガラス基材銅張積層板、紙・ガラス布・エポキシ銅張積層板、ガラス不織布・エポキシ銅張積層板などのコンポジット銅張積層板、ポリエーテルイミド樹脂基板、ポリエーテルケトン樹脂基板、ポリサルフォン系樹脂基板などの耐熱・熱可塑性基板、ポリエステル銅張フィルム基板、ポリイミド銅張フィルム基板などのフレキシブル基板が挙げられる。

【0036】

また、無機系基板の例としては、アルミナ基板、窒化アルミニウム基板、炭化ケイ素基板などのセラミック基板、アルミニウムベース基板、鉄ベース基板などの金属系基板、そのほか、ガラス基板、シリコン基板などが挙げられる。

【0037】

回路の構成材料の例としては、銀、金、銅などの金属を含有する導体、無機系酸化物などを含有する抵抗体、ガラス系材料および／または樹脂などを含有する低誘電体、樹脂や無機フィラーなどを含有する高誘電体、ガラス系材料などを含有する絶縁体などが挙げられる。

【0038】

本発明の誘電体組成物の形態は特に限定されず、膜状、棒状、球状など、用途に合わせて選択することができるが、特に膜状であることが好ましい。ここでいう膜とは、フィルム、シート、板、ペレットなども含まれる。もちろん、導通のためのビアホール形成、インピーダンスや静電容量あるいは内部応力の調整、または、放熱機能付与など、用途にあわせたパターン形成を行うこともできる。

【0039】

誘電体組成物を膜として用いる場合の膜厚は、 $0.5\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。さらに好ましくは、 $2\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下のものである。本発明の誘電体組成物をコンデンサ用層間絶縁材料として使用した場合に、大きな静電容量を確保するには膜厚が薄い方が好ましいが、 $0.5\mu\text{m}$ より薄い場

合にはピンホールなどが発生しやすく、電氣的絶縁が得られにくくなる。また、 $2\mu\text{m}$ より薄い場合には、耐久性促進テストであるPCT（プレッシャークッカーテスト）後に誘電正接が増大しやすくなるという問題が生じる。膜厚が $10\mu\text{m}$ を越えると、十分なコンデンサ性能を得るために大きな比誘電率が必要となる上、実装密度向上が難しくなることとなる。

【0040】

本発明の誘電体組成物の用途は特に限定されないが、例えば、高誘電率層としてプリント配線基板の内蔵コンデンサ用層間絶縁材料に用いられる他、多層基板の層間絶縁膜、周波数フィルター、無線用アンテナ、電磁シールドなど、多種の電子部品、装置への適用が可能である。

【0041】

本発明の誘電体組成物は、コンデンサ用層間絶縁材料として好ましく使用される。誘電体組成物を用いてコンデンサ用層間絶縁材料を形成する方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、上記したように、基板上に高誘電体を形成したあと、適宜電極を形成することで、得ることができる。

【0042】

本発明の誘電体組成物を用いて作製したコンデンサ用層間絶縁材料の面積あたりの静電容量としては、 $5\text{ nF}/\text{cm}^2$ 以上の範囲にあることが好ましい。さらに好ましくは、 $10\text{ nF}/\text{cm}^2$ 以上の範囲にあることが好ましい。 $5\text{ nF}/\text{cm}^2$ より小さい静電容量では、デカップリングキャパシタとして用いた場合に、システム全体の電源系との分離を十分に行うことができず、デカップリングキャパシタとして十分な機能を果たすことができない。

【0043】

静電容量の温度変化、面内ばらつきは、小さい方が回路設計上好ましい。温度変化についても、できるだけ小さい方が好ましく、例えば、X7R特性（ $-55\sim 125^\circ\text{C}$ において静電容量の温度変化率が $\pm 15\%$ 以内）を満たすことが好ましい。静電容量の面内ばらつきは、平均値に対して 5% 以下（静電容量の平均値 $-5\%\leq$ 静電容量 \leq 静電容量の平均値 $+5\%$ ）であることが好ましい。

【0044】

また、電源の電力損失を減らすためには、コンデンサの誘電正接は0.01～5%の範囲にあることが好ましく、さらに好ましくは、0.01～1%の範囲にあることである。ここで、静電容量や誘電正接などの電気特性は、周波数20k～1GHzでの測定値とする。

【0045】

【実施例】

以下、本発明の実施例について説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

【0046】

合成例1；分散液X-1

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径：0.5 μ m）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 社製、HPB-1000、平均粒径：0.059 μ m）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-1を得た。

【0047】

合成例2；分散液X-2

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径：0.5 μ m）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（Cabot Corp. 製、K-Plus16、平均粒径：0.06 μ m）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-2を得た。

【0048】

合成例3；分散液X-3

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-02、平均粒径：0.18 μ m）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径：0.059 μ m）1872重量部、 γ -ブチロ

ラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-3を得た。

【0049】

合成例4；分散液X-4

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-03、平均粒径：0.28 μ m）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径：0.059 μ m）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-4を得た。

【0050】

合成例5；分散液X-5

チタン酸バリウムフィラー（共立マテリアル（株）製、BT-HP3、平均粒径：1.2 μ m）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径：0.059 μ m）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-5を得た。

【0051】

合成例6；分散液X-6

チタン酸バリウムフィラー（共立マテリアル（株）製、BT-SA、平均粒径：2.1 μ m）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径：0.059 μ m）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-6を得た。

【0052】

合成例7；分散液X-7

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径：0.5 μm ）6067重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPS-2000、平均粒径：0.045 μm ）1613重量部、 γ -ブチロラクトン 1523重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）77重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-7を得た。

【0053】

合成例8；分散液X-8

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径：0.5 μm ）5261重量部、酸化チタンフィラー（東邦チタニウム（株）製、HT0514、平均粒径：0.2 μm ）2419重量部、 γ -ブチロラクトン 1523重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）77重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-8を得た。

【0054】

合成例9；分散液X-9

鉛系フィラー（Ferro社製、Y5V183U、平均粒径：0.9 μm ）6695重量部、チタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径：0.059 μm ）1145重量部、 γ -ブチロラクトン 1722重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）78重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-9を得た。

【0055】

合成例10；分散液X-10

チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径：0.5 μm ）7200重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビックケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液X-10を得た。

【0056】

合成例 11 ; 分散液 X-11

チタン酸バリウムフィラー（共立マテリアル（株）製、BTHP-8YF、平均粒径： $7\mu\text{m}$ ）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径： $0.5\mu\text{m}$ ）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビッケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液 X-11 を得た。

【0057】

合成例 12 ; 分散液 X-12

チタン酸バリウムのスプレードライ作製粉末の焼成品（平均粒径： $40\mu\text{m}$ ）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（共立マテリアル（株）製、BT-SA、平均粒径： $2.1\mu\text{m}$ ）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビッケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液 X-12 を得た。

【0058】

合成例 13 ; 分散液 X-13

チタン酸バリウムのスプレードライ作製粉末の焼成品（平均粒径： $20\mu\text{m}$ ）5328重量部、チタン酸バリウムフィラー（共立マテリアル（株）製、BT-SA、平均粒径： $2.1\mu\text{m}$ ）1872重量部、 γ -ブチロラクトン 928重量部、分散剤（ビッケミー・ジャパン（株）製、BYK-W9010）72重量部をホモジナイザーを用いて、氷冷下で1時間、混合分散し、分散液 X-13 を得た。

【0059】

合成例 14 ; エポキシ樹脂溶液 Y-1

エポキシ樹脂（日本化薬（株）製、“フェノライト” EPPN-502H）400重量部、硬化剤（大日本インキ化学工業（株）製、TD-2131）400重量部、 γ -ブチロラクトン 1000重量部を混合し、樹脂溶液 Y-1 を得た。

。

【0060】

合成例 15 ; エポキシ樹脂溶液 Y-2

エポキシ樹脂 (日本化薬 (株) 製、NC-3000) 600 重量部、硬化剤 (日本化薬 (株) 製、"カヤハード" TPM) 200 重量部、硬化促進剤 (北興化学 (株) 製トリフェニルホスフィン) 8 重量部、 γ -ブチロラクトン 1000 重量部を混合し、樹脂溶液 Y-1 を得た。

【0061】

実施例 1

攪拌機を備えた容器内に、分散液 X-1 ; 82 重量部を仕込み、樹脂溶液 Y-1 ; 18 重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで 1 時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を 100 体積%としたときの無機フィラー含有量は約 61 体積%に調整した。

【0062】

次に、このペースト組成物をアルミニウム基板及び銅基板上にスピンコーターを用いて塗布し、オーブンを用いて、120℃、10 分間で乾燥させた後、175℃、1 時間で硬化させ、誘電体組成物を得た。これら 2 種の基板上に形成した誘電体組成物の温度によるストレス変化をテンコール社製ストレス測定装置 Flexus を用いて測定し、その変化率から、誘電体組成物の線膨張係数を算出した結果、18 ppm/℃であり、銅 (17 ppm/℃) にほぼ一致した良好な値であった。

【0063】

さらに、アルミニウム基板上の誘電体組成物の表面に、アルミニウム電極を蒸着法により形成し、これと基板のアルミニウムを電極として、1 MHz における誘電特性をインピーダンスアナライザ (ヒューレットパッカード社製、HP4284A、HP16451B) を用いて、JIS K 6911 に準じて測定した結果、比誘電率は 55、誘電正接は 3.3%、面積当たりの静電容量は 4.9 nF/cm²であった。

【0064】

また、銅基板上の誘電体組成物をプレッシャークッカーテスト（PCT試験、100%RH、121℃、2気圧、100時間後）を行った結果、顕微鏡観察で何ら異常は観察されず、碁盤目テープ法による試験（JIS K5400）では、評価点数は10点であり、良好であった。

【0065】

なお、線膨張係数、誘電特性、PCT試験のいずれの測定においても、誘電体組成物の膜厚は、5、10、20 μm の3水準で評価を行なったが、膜厚による差異はみられなかったため、表1には10 μm での結果をまとめた。

【0066】

実施例2

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-1；86重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1；11重量部と γ -ブチロラクトン 3重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約72体積%に調整した。

【0067】

このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表1に示した。

【0068】

実施例3

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-1；88重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1；7重量部と γ -ブチロラクトン 5重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約79体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表1に示した。

【0069】

実施例 4

攪拌機を備えた容器内に、分散液 X-1 ; 89 重量部を仕込み、樹脂溶液 Y-1 ; 4 重量部と γ -ブチロラクトン 7 重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで 1 時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を 100 体積%としたときの無機フィラー含有量は約 86 体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例 1 と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT 試験を測定した結果を表 1 に示した。

【0070】

実施例 5

攪拌機を備えた容器内に、分散液 X-1 ; 90 重量部を仕込み、樹脂溶液 Y-1 ; 2 重量部と γ -ブチロラクトン 8 重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで 1 時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を 100 体積%としたときの無機フィラー含有量は約 91 体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例 1 と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT 試験を測定した結果を表 1 に示した。

【0071】

実施例 6

攪拌機を備えた容器内に、分散液 X-1 ; 91 重量部を仕込み、樹脂溶液 Y-1 ; 1 重量部と γ -ブチロラクトン 8 重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで 1 時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を 100 体積%としたときの無機フィラー含有量は約 93 体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例 1 と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT 試験を測定した結果を表 1 に示した。

【0072】

実施例 7 ~ 13

攪拌機を備えた容器内に、表 1 に示したそれぞれの分散液 ; 88 重量部を仕込

み、表1に示したそれぞれの樹脂溶液；7重量部とγ-ブチロラクトン 5重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約79体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表1に示した。

【0073】

実施例14

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-7；93重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1；7重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約79体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表1に示した。

【0074】

実施例15

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-8；93重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1；7重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約81体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表1に示した。

【0075】

実施例16

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-9；93重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1；7重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、

ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約86体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様に誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表1に示した。

【0076】

【表1】

表1

ペースト組成物															高誘電体組成物				
分散液	無機フィラー				平均粒径 (μm)	組成	最大/ 最小(比)	樹脂溶液	無機フィラー/ 樹脂の比率		分散 安定性	膜厚 (μm)	線膨張 係数 ($\text{ppm}/^\circ\text{C}$)	誘電特性 @1MHz			PCT試験後 老後目試験の 評価点数		
	組成	平均粒径 (μm)	組成	最大/ 最小(比)		樹脂溶液		無機フィラー/ 樹脂の比率		分散 安定性	膜厚 (μm)	線膨張 係数 ($\text{ppm}/^\circ\text{C}$)	比誘電率	誘電正接 (%)	静電容量 (nF/cm^2)		PCT試験後 老後目試験の 評価点数		
実施例1	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-1	61/39	安定	安定	10	18	55	3.3	4.9	10			
実施例2	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-1	72/28	安定	安定	10	17	98	4.4	8.7	10			
実施例3	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-1	79/21	安定	安定	10	16	110	4.4	9.7	10			
実施例4	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-1	86/14	安定	安定	10	16	109	4.6	9.7	10			
実施例5	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-1	91/9	安定	安定	10	18	98	6.2	8.7	8			
実施例6	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-1	93/7	安定	安定	10	16	75	8.3	6.6	4			
実施例7	X-1	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.059	8.5	Y-2	79/21	安定	安定	10	16	106	2.9	9.4	10			
実施例8	X-2	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.060	8.3	Y-2	79/21	安定	安定	10	16	114	2.2	10.1	10			
実施例9	X-3	チタン酸バリウム	0.18	チタン酸バリウム	0.059	3.1	Y-1	79/21	安定	安定	10	16	93	2.8	8.2	10			
実施例10	X-4	チタン酸バリウム	0.28	チタン酸バリウム	0.059	4.7	Y-1	79/21	安定	安定	10	16	102	2.8	9.0	10			
実施例11	X-5	チタン酸バリウム	1.2	チタン酸バリウム	0.059	20.3	Y-1	79/21	不安定 (クラック発生)	不安定 (クラック発生)	10	16	135	3.7	12.0	10			
実施例12	X-6	チタン酸バリウム	2.1	チタン酸バリウム	0.059	35.6	Y-1	79/21	不安定 (クラック発生)	不安定 (クラック発生)	10	16	150	4.1	13.3	10			
実施例13	X-2	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.060	8.3	Y-1	79/21	安定	安定	10	16	115	2.9	10.2	10			
実施例14	X-7	チタン酸バリウム	0.5	チタン酸バリウム	0.045	11.1	Y-1	79/21	安定	安定	10	16	91	3.9	8.1	10			
実施例15	X-8	チタン酸バリウム	0.5	酸化チタン	0.2	2.5	Y-1	81/29	若干不安定 (沈降)	若干不安定 (沈降)	10	15	47	2.6	4.2	10			
実施例16	X-9	鉛系フィラー	0.9	チタン酸バリウム	0.059	15.3	Y-1	86/14	安定	安定	10	15	80	3.5	7.1	10			

【0077】

比較例1

合成例14の樹脂溶液を用い、無機フィラー分散液を用いなかった他は実施例

1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表2に示した。

【0078】

比較例 2

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-10; 88重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1; 7重量部と γ -ブチロラクトン 5重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約79体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、線膨張係数、誘電特性、PCT試験を測定した結果を表2に示した。

【0079】

比較例 3

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-11; 88重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1; 7重量部と γ -ブチロラクトン 5重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このペースト組成物は、放置によりフィラーが沈降しやすかった。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約79体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例1と同様にして誘電体組成物を得て、誘電特性の測定を試みたが、測定値が安定せず、測定することができなかった。

【0080】

比較例 4

攪拌機を備えた容器内に、分散液X-12; 88重量部を仕込み、樹脂溶液Y-1; 7重量部と γ -ブチロラクトン 5重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで1時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このペースト組成物は、放置によりフィラーが沈降しやすかった。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を100体積%としたときの無機フィラー含有量は約79体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用

いて、実施例 1 と同様にして誘電体組成物を得て、誘電特性の測定を試みたが、測定値が安定せず、測定することができなかった。

【0081】

比較例 5

攪拌機を備えた容器内に、分散液 X-13 ; 8893 重量部を仕込み、樹脂溶液 Y-1 ; 7 重量部と γ -ブチロラクトン 5 重量部を徐々に加えて、レットダウン法を用いて混合したのち、さらに、ボールミルで 1 時間攪拌して、ペースト組成物を得た。このペースト組成物は、放置によりフィラーが沈降しやすかった。このとき、無機フィラーと樹脂の合計量を 100 体積%としたときの無機フィラー含有量は約 79 体積%に調整した。このようにして得られたペースト組成物を用いて、実施例 1 と同様にして誘電体組成物を得て、誘電特性の測定を試みたが、測定値が安定せず、測定することができなかった。

【0082】

比較例 6

大粒径フィラーであるチタン酸バリウムフィラー（堺化学工業（株）製、BT-05、平均粒径： $0.5\mu\text{m}$ ）をチタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径： $0.059\mu\text{m}$ ）に変更し、小粒径フィラーであるチタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPB-1000、平均粒径： $0.059\mu\text{m}$ ）をチタン酸バリウムフィラー（TPL, Inc. 製、HPS-2000、平均粒径： $0.045\mu\text{m}$ ）に変更する以外は合成例 3 と同様にして分散液を作製しようと試みたが、フィラーが凝集して分散液が不安定であり、ペースト組成物を得ることができなかった。

【0083】

【表 2】

表2

表2	ペースト組成物										高誘電体組成物					
	分散液	無機フイラー					樹脂溶液	無機フイラー/ 樹脂の比率	分散 安定性	膜厚 (μm)	線膨張 係数 ($\mu\text{m}/^{\circ}\text{C}$)	誘電特性 @1MHz			PCT試験後 基板目試験の 評価点数	
		組成	平均粒径 (μm)	組成	平均粒径 (μm)	最大/ 最小(比)						体積比	比誘電率	誘電正接 (%)		静電容量 (nF/cm^2)
比較例1	—					Y-1	0/100	—	10	53	72	6.8	6.4	8		
比較例2	X-10	チタン酸バリウム	0.5		—	Y-1	79/21	安定	10	25	72	6.8	6.4	8		
比較例3	X-11	チタン酸バリウム	7	チタン酸バリウム	0.5	14	Y-1	79/21	不安定 (フイラー沈降)	10	32	測定値が安定せず、測定不可能			6	
比較例4	X-12	チタン酸バリウム	40	チタン酸バリウム	2.1	19	Y-1	79/21	不安定 (フイラー沈降)	10	36	測定値が安定せず、測定不可能			6	
比較例5	X-13	チタン酸バリウム	20	チタン酸バリウム	2.1	9.5	Y-1	79/21	不安定 (フイラー沈降)	10	35	測定値が安定せず、測定不可能			6	
比較例6	—	チタン酸バリウム	0.059	チタン酸ストロンチウム	0.045	1.3	Y-1	79/21	不安定 (凝集)	フイラー凝集のためペースト作製できず						

【0084】

【発明の効果】

本発明の誘電体組成物は、配線金属の線膨張係数にほぼ近い低線膨張係数を有しているため、層間絶縁材料として用いた場合、配線層との間での剥離や配線断裂などの不具合が生じにくく、高い信頼性を有するコンデンサを得ることができ、さらには、膜厚・物性が均一な薄膜を容易に得ることができ、大静電容量に適しているため、高密度SiPに内蔵されるコンデンサやコンデンサとしての機能を有する回路基板材料用層間絶縁材料に有用である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 線膨張係数が低く、大きな静電容量を有する誘電体組成物を得ること。

【解決手段】 無機フィラーと樹脂を有する誘電体組成物であって、少なくとも2種類の平均粒径を有する無機フィラーを含み、最大の平均粒径が0.1～5 μm であることを特徴とする誘電体組成物。

【選択図】 なし

特願 2003-186632

出願人履歴情報

識別番号

[000003159]

1. 変更年月日

2002年10月25日

[変更理由]

住所変更

住所

東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

氏名

東レ株式会社